Gas diffusi	n electrode f r p lymer el ctrolyte membran fuel cells
Patent Number:	US5998057
Publication date:	1999-12-07
Inventor(s):	KOSCHANY ARTHUR (DE); LUCAS CHRISTIAN (DE); SCHWESINGER THOMAS (DE)
Applicant(s)::	MAGNET MOTOR GMBH (DE)
R quested Patent:	☐ <u>DE19544323</u>
Application Number:	US19980077408 19981005
Priority Number (s):	DE19951044323 19951128; WO1996EP05276 19961128
IPC Classification:	H01M4/86
EC Classification:	C25B9/00H2B, C25B11/03B, H01M4/86, H01M4/88, H01M4/96, H01M8/10B2
Equivalents:	AU1094997, AU712037, BR9611769, BR9611783, CA2238738, CA2238945, CN1202984, EP0864183
	(WO9720359), <u>B1</u> , <u>EP0867048</u> (WO9720358), ES2153606T, JP2000500910T, JP2000513480T,
	□ <u>wo9720358</u> , □ <u>wo9720359</u>
Abstract	
PCT No. PCT/EP96/05276 Sec. 371 Date Oct. 5, 1998 Sec. 102(e) Date Oct. 5, 1998 PCT Filed Nov. 28, 1996 PCT Pub. No. WO97/20359 PCT Pub. Date Jun. 5, 1997A particularly inexpensive, lightweight, homogeneous and porous gas diffusion electrode for polymer electrolyte membrane fuel cells is made in that carbonized carbon fiber nonwoven fabric is coated with a mixture of a soot suspension and a polytetrafluoroethylene suspension and sintered thereafter. The gas diffusion electrode may have a catalytically active layer applied thereto.	
Data supplied from the esp@cenet database - I2	

 $h \qquad \qquad e \quad ce \ e \quad \qquad b \quad c \qquad \qquad e$

BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND

[®] Off nlegungsschrift [®] DE 195 44 323 A 1

6) int. Cl.⁶: H 01 M 4/94 H 01 M 4/88 H 01 M 4/92



DEUTSCHES PATENTAMT 2) Aktenzeichen: 195 44 323.3
 2) Anmeldetag: 28. 11. 95
 3) Offenlegungstag: 5. 6. 97

(1) Anmelder:

Magnet-Motor Gesellschaft für magnetmotorische Technik mbH, 82319 Starnberg, DE

(4) Vertreter:

Klunker und Kollegen, 80797 München

@ Erfinder:

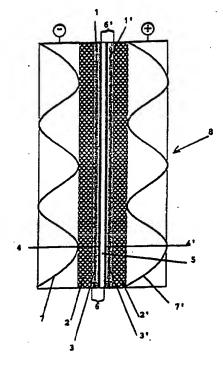
Koschany, Arthur, Dr., 82343 Pöcking, DE; Lucas, Christian, 82152 Planegg, DE; Schwesinger, Thomas, 94358 Kirchroth, DE

(B) Entgegenhaltungen:

DE 29 41 774 C2
DE 44 47 132 A1
DE 33 07 090 A1
EP 06 87 023 A1
EP 06 54 837 A1
EP 05 57 259 A1

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

- (5) Gasdiffusionselektrode für Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzeilen
- Es wird eine besonders kostengünstige, leichte, homogene und poröse Gasdiffusionselektrode für Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzellen hergestellt, indem carbonisiertes Kohlefaservlies mit einer Mischung aus einer Ruß-Suspension und einer Polytetrafluorethylen-Suspension beschichtet und anschließend gesintert wird. Die Gasdiffusionselektrode kann mit einer katalytisch aktiven Schicht belegt werden.



Beschreibung

Die Erfindung betrifft Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzellen, insbesondere Gasdiffusionselektroden für Brennstoffzellen oder Elektrolysezellen, ein Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionselektrode für Brennstoffzellen oder Elektr lysezellen, ein Verfahren zur Beschichtung von Gasdiffusionselektroden mit einer katalytisch aktiven Schicht und ein Verfahren zur Herstellung einer Membran-Elektrodeneinheit.

In Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzellen wird eine Gasdiffusionsmatte als Elektrode zwischen Polymerelektrolytmembran und Stromsammlern, z. B. bipolaren Platten, verwendet. Sie hat die Funktion, den in der Membrane erzeugten Strom abzuleiten und muß die 15 Reaktionsgase zur katalytischen Schicht durchdiffundieren lassen. Außerdem muß die Gasdiffusionselektrode zumindest in der der Membrane zugewandten Schicht wasserabweisend sein, um zu verhindern, daß bei der Reaktion gebildetes Wasser die Poren der Gas- 20 diffusionselektrode flutet. Für viele Anwendungen, beispielsweise in der Raumfahrt, ist es zudem wichtig, daß die zum Aufbau der Zellstapel verwendeten Materialien leicht und platzsparend sind. Stets von Interesse ist eine möglichst kostengünstige Herstellung der Materialien.

Bisher werden für derartige Gasdiffusionselektroden typischerweise Matten aus graphitisiertem Gewebe verwendet, die ab einer Dichte von 116 g/m² erhältlich sind. Die Gasdiffusionsmatten aus graphitisiertem Geniedrigem Druck, oft nicht ausreichend gut diffundieren und sind außerdem relativ schwer. Bei ihrer Herstellung werden hohe Temperaturen benötigt, was zu einem entsprechend hohen Energieverbrauch und hohen Preisen führt.

Aufgabe dieser Erfindung ist es, eine kostengünstig herstellbare, leichte Gasdiffusionselektrode zur Verfügung zu stellen, die Sauerstoff, insbesondere aus der Luft unter geringem Überdruck, gut diffundieren läßt und die außerdem die erforderliche hohe elektrische 40 Leitfähigkeit besitzt und wasserabstoßend ist.

Aufgabe der Erfindung ist es ferner, eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle mit einer solchen Gasdiffusionselektrode zur Verfügung zu stellen.

Aufgabe der Erfindung ist es außerdem, ein Verfah- 45 ren zur Herstellung einer derartigen Gasdiffusionselektrode anzugeben.

Aufgabe der Erfindung ist es auch, ein Verfahren zur Beschichtung einer Gasdiffusionselektrode mit einer katalytisch aktiven Schicht bereitzustellen.

Eine weitere Aufgabe der Erfindung ist es, ein Verfahren zur Herstellung einer Membran-Elektrodeneinheit anzugeben.

Diese Aufgaben werden gelöst durch die Gasdiffusionselektrode gemäß Anspruch 1, die Polymerelektro- 55 lytmembran-Brennstoffzelle gemäß Anspruch 10, das Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionselektrode gemäß Anspruch 11, das Verfahren zur Beschichtung einer Gasdiffusionselektrode gemäß Anspruch 19 und das Verfahren zur Herstellung einer Membran-Elektro- 60 deneinheit gemäß Anspruch 24. Vorteilhafte Weiterbildungen der Erfindung sind in den entsprechenden Unteransprüchen angegeben.

Abb. 1 zeigt eine erfindungsgemäß Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle.

Die Gasdiffusionselektroden gemäß der Erfindung eignen sich für Brennstoffzellen, insbesondere Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzellen, und Polymerelek-

tolytmembran-Elektrolysezellen. In Polymerelektrolyt-Brennstoffzellen können die erfindungsgemäßen Gasdiffusionselektroden sowohl als Anode als auch als Kathode verwendet werden, in Elektrolysezellen sind sie 5 ausschließlich an der Wasserstoff-Seite einsetzbar, da an der Sauerst ff-Seite Oxidation stattfinden würde. Mit bes nderem Vorteil können die erfindungsgemäßen Gasdiffusionselektroden in Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzellen verwendet werden, die als Brenn-10 gas Wasserstoff und als Oxidationsmittel Luft verwenden und die bei niedrigem Druck von weniger als 0,5 bar, bevorzugt weniger als 0,1 bar betrieben werden. Insbesondere bevorzugt sind Betriebsdruckdifferenzen in der Größenordnung von etwa 10 mbar.

Als Ausgangsmaterial für die erfindungsgemäßen Gasdiffusionselektroden wird ein sehr leichtes Kohlefaservlies, bevorzugt aus carbonisierten Fasern, verwendet. Besonders gut geeignet sind carbonisierte Kohlefaservliese mit flächenspezifischen Massen bis zu 60 g/m², typischerweise 30 g/m². Carbonisierte Kohlefasern können sehr viel billiger hergestellt werden als graphitisierte Fasern, denn zu ihrer Herstellung werden wesentlich geringere Temperaturen benötigt.

Zur Herstellung einer erfindungsgemäßen Gasdiffu-25 sionselektrode wird zunächst aus Ruß und mindestens einer Flüssigkeit eine Suspension hergestellt, z. B. eine Suspension aus Vulcan XC 72 und Wasser. Zur Herabsetzung der Oberflächenspannung können Zusätze wie z. B. Isopropanol beigegeben werden. Derartige Zusätwebe lassen Sauerstoff, besonders O2 aus der Luft unter 30 ze verbessern die Herstellbarkeit der Suspension, da sie eine bessere Benetzbarkeit des Rußes und damit eine bessere Mischbarkeit von Ruß und Suspensionsflüssigkeit bewirken. Diese Suspension wird intensiv gemischt mit einer Suspension aus PTFE in mindestens einer 35 Flüssigkeit, vorzugsweise Wasser. PTFE und Ruß werden bevorzugt im Massenverhältnis 1:10 bis 1:1 eingesetzt. Typisch sind 25 bis 40% PTFE bezogen auf die eingewogene Menge an Ruß. Das Kohlefaservlies wird mit dieser Mischung getränkt bzw. die Mischung wird auf das Kohlefaservlies gleichmäßig aufgetragen, so daß das Kohlefaservlies im wesentlichen homogen imprägniert wird. Anschließend wird das Kohlefaservlies getrocknet, wobei sich die zur Trocknung erforderlichen Temperaturen nach der Art der verwendeten Flüssigkeiten richten. In der Regel ist ein Trocknen bei höheren Temperaturen als Raumtemperatur vorteilhaft, z. B. etwa 110°C oder darüber bei vorwiegend wäßrigen Suspensionen. Das Imprägnieren und Trocknen des Kohlefaservlieses kann ein- oder mehrmals wiederholt werden. Das so imprägnierte Kohlefaservlies wird schließlich bei einer Temperatur von mindestens 200°C gesintert. Bevorzugt wird etwa eine halbe Stunde lang bei Temperaturen von etwa 300°C bis 400°C gesintert.

Die so erhaltene Elektrode aus Kohlefaservlies ist besonders homogen, porös und leicht und dennoch mechanisch sehr stabil. Sie läßt Sauerstoff besser diffundieren als die bisher verwendeten graphitisierten Gewebe und trägt wegen ihres im Vergleich zu graphitisierten Geweben geringeren Gewichts dazu bei, das Gesamtgewicht der Brennstoffzellen zu verringern. Ein wichtiger Faktor sind auch die gegenüber graphitisierten Geweben erzielten Einsparungen beim Herstellungsverfahren der erfindungsgemäßen Gasdiffusionselektroden: Bei der Herstellung der Kohlefaservliese sind niedrigere Temperaturen erforderlich als bei graphitisierten Geweben, was zu Energie- und damit Kostenersparnissen führt. Wegen ihres Anteils an Ruß und Polytetrafluorethylen besitzen die Gasdiffusionselektroden gemäß der Erfindung die erforderliche hohe Leitfähigkeit für elektrischen Strom und sind wasserabstoßend.

Die wie vorstehend beschrieben hergestellte Gasdiffusionselektrode kann nun in eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle eingesetzt werden. Da die Elektrode keine katalytisch aktive Schicht enthält, muß eine mit Katalysator beschichtete Membran verwendet werden. Alternativ kann jedoch auch die erfindungsgemäße Gasdiffusionselektrode mit Katalysator beschichtet werden. Die katalytische Schicht muß gasdurchlässig 10 sein und elektrische Leitfähigkeit sowie H+-Ionenleitfähigkeit besitzen und selbstverständlich die gewünschte Reaktion katalysieren. Diese Eigenschaften erhält man bei einer sehr dünnen Schicht, die ionenleitfähiges Material, z. B. Nafion-Polymer und Edelmetallkatalysator 15 gemischt enthält. Als Edelmetallkatalysator wird bevorzugt Platin auf Kohlenstoffträger verwendet. Eine sehr günstige Platinbeladung ist etwa 0,2 mg/cm² der Gasdiffusionselektrode. Das Masseverhältnis von Platin auf Kohlenstoffträger: Nafion liegt typischerweise im Be- 20 reich von 2:1 bis 4:1. Der Kohlenstoffträger ist elektrisch leitfähig und porös, so daß eine ausreichende Leitfähigkeit und Gasdurchlässigkeit der katalytischen Schicht gewährleistet ist. Das Polymer dient gleichzeitig als Bindemittel für die Schicht. Die geringe Schichtdicke 25 von größenordnungsmäßig etwa 20 µm garantiert kurze Transportwege für Elektronen, H⁺-Ionen und Gas.

Erfindungsgemäß wird eine Gasdiffusionselektrode folgendermaßen mit einer katalytisch aktiven Schicht beschichtet: Edelmetallkatalysator auf Kohlenstoffträ- 30 ger, z. B. 20% Pt, 80% C, wird mit gelöstem oder suspendiertem ionenleitendem Polymer intensiv gemischt. Als ionenleitendes Polymer kann z. B. Nafion, gelöst in Alkoholen und Wasser, verwendet werden. Die Suspension kann ggf. mit einer geeigneten Flüssigkeit, z. B. 35 Wasser, verdünnt werden. Die Suspension aus Katalysator und Polymer wird auf eine Oberfläche der Gasdiffusionselektrode aufgebracht und die aufgebrachte Schicht dann getrocknet. Meist ist es vorteilhaft, vor dem Aufbringen der Suspension einen Teil der Alko- 40 hole, eventuell bei leicht erhöhter Temperatur, zu verdunsten. Die Verdunstung eines Teils der Alkohole dient dazu, die Oberflächenspannung der Suspension zu erhöhen, denn bei zu geringer Oberflächenspannung besteht die Gefahr, daß das imprägnierte Kohlefaservlies die 45 Suspension aufsaugt. Ziel ist es jedoch, eine dünne Katalysatorschicht an der Oberfläche des imprägnierten Kohlefaservlieses zu erhalten.

Die katalytisch aktive Schicht kann z. B. durch Aufsprühen, durch Siebdruck oder durch Aufpinseln aufge- 50 bracht werden. Eine besonders gute Haftung der katalytisch aktiven Schicht erhält man, wenn man die Schritte des Aufbringens und Trocknens ein- oder mehrmals wiederholt. Auf diese Weise kann auch die Bildung von Rissen in der Schicht zuverlässig vermieden werden. Die 55 katalytisch aktive Schicht muß nicht notwendigerweise über ihre ganze Dicke homogen sein, vielmehr ist es meist günstiger, wenn ein Konzentrationsgradient an elektrisch und ionenleitendem Material senkrecht zur Schicht besteht. Wenn man die Schicht in mehreren 60 Schritten aufbringt, ist es durch Wahl der geeigneten Konzentrationen der jeweiligen Suspension an Kohlenstoff und Polymer leicht möglich, Schichten zu erhalten, die am Kohlefaservlies kohlenstoffreich, an der später der Membran zugewandten Seite jedoch reich an Poly- 65 mer sind. Eine derartige Verteilung an elektronenleitendem Kohlenstoff und ionenleitendem Polymer ist insofern von Vorteil, als sie der unterschiedlichen Konzen-

tration an Elektronen und Ionen in der katalytisch aktiven Schicht angepaßt ist. Betrachtet man beispielsweise die Anode, so wird das aus dem Kohlefaservlies in die katalytisch aktive Schicht übertretende Brenngas auf seinem Weg durch die Schicht hindurch in Richtung Polymerelektrolytmembran in zunehmendem Maße ionisiert, so daß die Konzentration an Ionen und damit der Bedarf an ionenleitendem Material in membrannahen Bereichen der katalytisch aktiven Schicht höher ist als in den an das Kohlefaserviies angrenzenden Bereichen. Die Konzentration an Elektronen und damit der Bedarf an elektronenleitendem Kohlenstoff hingegen ist in den membrannahen Bereichen geringer, da nicht die Gesamtmenge der freiwerdenden Elektronen diese Bereiche passiert, sondern lediglich die bei der Ionisierung des in dem jeweiligen Bereich noch vorhandenen neutralen Restgases freiwerdenden Elektronen Analog wird in der katalytisch aktiven Schicht der Kathode das Oxidationsgas auf seinem Weg durch die Schicht durch Aufnahme von Elektronen in zunehmendem Ausmaß ionisiert, so daß auch hier die Konzentration an Ionen in membrannahen Bereichen höher und die Konzentration an Elektronen geringer ist als in membranabgewandten Bereichen.

Das Verfahren kann bei jeder beliebigen nicht katalysierten Gasdiffusionselektrode angewendet werden.

Die Gasdiffusionselektrode kann durch ein leitendes Gitternetz verstärkt werden. Für das Gitternetz eignet sich besonders ein Nickel-Quadratmaschengewebe mit einer Maschenweite von 0,4 bis 0,8 mm und einer Drahtstärke von 0, 12 bis 0,28 mm. Nickel ist insofern ein günstiges Material, als es für die Verhältnisse in der Brennstoffzelle chemisch inert ist und einen wesentlich kleineren Übergangswiderstand zu imprägniertem Kohlefaservlies aufweist als z. B. Edeistahl. Das Gitternetz wird bei der Montage der Brennstoffzelle auf der der Membran abgewandten Seite der Gasdiffusionselektrode eingebaut. Seine Aufgabe ist es, eine sehr gute Stromableitung von der Gasdiffusionselektrode sicherzustellen und gleichzeitig die Elektrode gleichmäßig an die Membran anzupressen.

Bei Bedarf können auch mehrere Kohlefaservliese nach dem Imprägnieren und Sintern zu einer Gasdiffusionselektrode kombiniert werden. Durch die Verwendung mehrerer imprägnierter Kohlefaservliese übereinander wird die Gefahr verringert, daß sich das Gitternetz und/oder Teile der Stromsammler, z. B. der bipolaren Platten, bis zur Membran hin durchdrücken und diese beschädigen. Typischerweise werden zwei bis drei imprägnierte Kohlefaservliese miteinander kombiniert. Die Verwendung von mehr als vier Kohlefaservliesen übereinander kann zu einer nicht mehr ausreichenden Gasdiffusion führen, die sich in der U-I-Kennlinie bemerkbar macht. Zur Erzielung einer guten Haftung der imprägnierten Kohlefaservliese aneinander kann die gewünschte Anzahl imprägnierter und gesinterter Kohlefaservliese gepreßt werden, wobei bevorzugt Drücke von bis zu 500 bar und Temperaturen bis 400°C angewendet werden. Typische Bedingungen sind ein Druck von ca. 200 bar und eine Temperatur von ca. 140°C. Das Beschichten einer Oberfläche einer derartigen Gasdiffusionselektrode mit Katalysator führt man am besten nach dem Pressen durch.

Die erfindungsgemäße Gasdiffusionselektrode kann mit einer Polymerelektrolytmembran zu einer Membran-Elektrodeneinheit kombiniert werden. Je nach dem, ob die Gasdiffusionselektrode eine katalytisch aktive Schicht trägt oder nicht, muß eine Membran ohne oder mit katalytisch aktiver Schicht verwendet werden. Zur Herstellung einer Membran-Elektrodeneinheit wird eine Gasdiffusionselektrode, die aus einem oder mehreren imprägnierten Kohlefaservliesen aufgebaut sein kann, an einer Seite einer in ihrer H⁺-Form vorliegenden Polymerelektrolytmembran angeordnet und anschließend bei Drücken bis zu 500 bar und Temperaturen bis zu 250°C aufgepreßt. Typische Bedingungen sind ein Druck von ca. 200 bar und eine Temperatur von ca. 125°C. Wenn die Gasdiffusionselektrode die kataly- 10 tisch aktive Schicht enthält, muß sie dergestalt auf die Membran aufgepreßt werden, daß die katalytisch aktive Schicht in Kontakt mit der Membran steht. Mit beiden Seiten der Membran kann auf diese Weise verfahren werden, so daß sowohl Anode als auch Kathode auf 15 diese Weise hergestellt werden können. Durch das Aufpressen wird der elektrische Kontakt zwischen der Katalysatorschicht auf der Membran und dem Kohlefaservlies bzw. zwischen der Katalysatorschicht auf dem Kohlefaservlies und der Membran gegenüber einem lo- 20 sen Zusammenspannen deutlich verbessert. Vor dem Einbau der Membran-Elektrodeneinheit in eine Polymerelektrolytmembran-Brennstoffzelle können Gasdiffusionselektroden auf der der Membran abgewandten Seite durch Beilegung eines Gitternetzes ver- 25 stärkt werden.

Eine besonders bevorzugte Ausführungsform einer Brennstoffzelle mit erfindungsgemäßer Gasdiffusionselektrode ist in Abb. 1 gezeigt. Anode 1 und Kathode 1' werden von den imprägnierten Kohlefaservliesen 3 und 3' gebildet. Anode 1 und Kathode 1' tragen an ihren der Polymerelektrolytmembran 5 zugewandten Seiten jeweils eine Katalysatorschicht 4 bzw. 4'. Anode 1 und Kathode 1' bilden zusammen mit der Polymerelektrolytmembran 5 die Membran-Elektrodeneinheit 6 bzw. 35 6'. An ihren von der Membran abgewandten Seiten sind Anode 1 und Kathode 1' durch leitende Gitternetze 2 bzw. 2' verstärkt. Die bipolaren Platten 7 und 7' begrenzen die Zelle anoden-bzw. kathodenseitig.

Beispiel für die Herstellung einer erfindungsgemäßen 40 Gasdiffusionselektrode:

45 g Ruß (Vulcan XC 72) werden in 450 ml Wasser und 495 ml Isopropanol suspendiert. Diese Suspension wird intensiv gemischt mit 32, 17 g einer PTFE-Suspension (60% Hostaflonfasern in wäßriger Suspension). Mit der resultierenden Mischung wird ein carbonisiertes Kohlefaservlies (30 mg/m²) gleichmäßig bestrichen und das Vlies anschließend bei ca. 70°C getrocknet. Das Bestreichen und Trocknen wird zweimal wiederholt. Nach dem letzten Trocknen wird das imprägnierte Kohlefaservlies ca. 30 Minuten lang bei 400°C gesintert. Man erhält ein gleichmäßig mit Vulcan XC 72 und Hostaflon imprägniertes Kohlefaservlies.

Beispiel für die Beschichtung einer Gasdiffusionselektrode mit einer katalytisch aktiven Schicht:

0,6 g Edelmetallkatalysator auf Kohlenstoffträger (20% PT, 80% C) werden mit 4,0 g einer 5%igen Nafionlösung (Nafion gelöst in niederen aliphatischen Alkoholen und Wasser) und 10,0 g Wasser intensiv gemischt. Danach werden 2 g der enthaltenen Alkohole 60 bei 50°C abgedampft, um die Oberflächenspannung der Suspension zu erhöhen. Die Suspension wird nun auf ein imprägniertes Kohlefaservlies aufgesprüht und anschließend bei 80°C getrocknet. Das Aufsprühen und Trocknen wird zweimal wiederholt. Es resultiert eine 65 mit Katalysator beschichtete Gasdiffusionselektrode.

Die so erzeugte Gasdiffusionselektrode läßt Sauerstoff besser diffundi ren als graphitisiertes Gewebe, besitzt durch ihren Rußgehalt eine hohe elektrische Leitfähigkeit und ist durch ihren PTFE-Gehalt wasserabsto-Bend. Außerdem ist sie kostengünstiger herstellbar, sehr hom gen und besitzt eine geringere Masse/Flächeneinheit als die bisher bekannten graphitisierten Gewebe mit Ruß.

Patentansprüche

- 1. Gasdiffusionselektrode (1, 1') für eine Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (8) oder die Wasserstoffseite einer Polymerelektrolyt-Membran-Elektrolysezelle, die elektrisch leitfähig, hydrophob und gasdurchlässig ist, dadurch gekennzeichnet, daß sie mindestens ein Kohlefaservlies (3, 3') enthält, das mit Ruß und Polytetrafluorethylen imprägniert ist. 2. Gasdiffusionselektrode (1, 1') nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Kohlefaservlies
- 3. Gasdiffusionselektrode (1, 1') nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß das Kohlefaservlies (3, 3') eine flächenspezifische Masse von bis zu 60 g/m² besitzt.

(3, 3') aus carbonisierten Fasern besteht.

- 4. Gasdiffusionselektrode (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß sie ein bis vier Kohlefaservliese enthält.
- 5. Gasdiffusionselektrode (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß sie eine katalytisch aktive Schicht (4, 4') aufweist.
- 6. Gasdiffusionselektrode (1, 1) nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytisch aktive Schicht (4, 4') elektrisch leitendes Material und ionenleitendes Material aufweist, wobei die Konzentration an elektrisch leitendem Material senkrecht zur Schicht mit zunehmender Entfernung vom Kohlefaservlies abnimmt und die Konzentration an ionenleitendem Material zunimmt.
- 7. Gasdiffusionselektrode (1, 1') nach Anspruch 5 oder 6, dadurch gekennzeichnet, daß die katalytisch aktive Schicht (4, 4') mindestens einen Edelmetallkatalysator auf Kohlenstoffträger und mindestens ein ionenleitendes Polymer aufweist.
- 8. Gasdiffusionselektrode (1, 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß sie durch ein leitendes Gitternetz (2, 2') verstärkt ist.
- 9. Gasdiffusionselektrode (1, 1') nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß das Gitternetz (2, 2') ein Nickel-Quadratmaschengewebe mit einer Maschenweite von 0,4 bis 0,8 mm und einer Drahtstärke von 0,12 bis 0,28 mm ist.
- 10. Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (8) mit einer Anode (1), einer Kathode (1'), einer zwischen Anode und Kathode angeordneten Polymerelektrolytmembran (5), dadurch gekennzeichnet, daß mindestens eine der Elektroden (1, 1') als Gasdiffusionselektrode nach einem der Ansprüche 1 bis 9 ausgehildet ist
- 11. Verfahren zur Herstellung einer Gasdiffusionselektrode (1, 1') für eine Polymerelektrolyt-Brennstoffzelle (8), folgende Schritte aufweisend:
 - a) Herstellen einer Suspension aus Ruß und mindestens einer Flüssigkeit,
 - b) Bereitstellen einer Suspension aus Polytetrafluorethylen und mindestens einer Flüssigkeit.
 - c) intensiv Mischen d r in Schritt a) und Schritt
 - b) hergestellten Suspensionen,
 - d) Imprägnieren eines Kohlefaservlieses mit

der in Schritt c) hergestellten Mischung,

- e) Trocknen des imprägnierten Kohlefaservlieses,
- f) Sintern des imprägnierten Kohlefaservlieses bei einer Temperatur von mindestens 200°C.
- 12. Verfahren nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, daß die Schritte d) und e) ein- oder mehrmals wiederholt werden.
- 13. Verfahren nach Anspruch 11 oder 12, dadurch gekennzeichnet, daß das mindestens eine gesinterte Kohlefaservlies bei einem Druck von bis zu 500 bar und einer Temperatur bis zu 400°C gepreßt wird.
- 14. Verfahren nach einem der Ansprüche 11 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß das Trocknen des imprägnierten Kohlefaservlieses bei einer höheren 15 Temperatur als Raumtemperatur erfolgt.
- 15. Verfahren nach einem der Ansprüche 11 bis 14, dadurch gekennzeichnet, daß carbonisiertes Kohlefaservlies verwendet wird.
- 16. Verfahren nach einem der Ansprüche 11 bis 15, 20 dadurch gekennzeichnet, daß Kohlefaservlies mit einer flächenspezifischen Masse von bis zu 60 g/m² verwendet wird.
- 17. Verfahren nach einem der Ansprüche 11 bis 16, dadurch gekennzeichnet, daß der Suspension aus 25 Ruß und mindestens einer Flüssigkeit ein Mittel zur Herabsetzung der Oberflächenspannung zugefügt wird.
- 18. Verfahren nach einem der Ansprüche 11 bis 17, dadurch gekennzeichnet, daß Polytetrafluorethylen 30 und Ruß im Massenverhältnis 1:10 bis 1:1 eingesetzt werden.
- 19. Verfahren zur Beschichtung einer Gasdiffusionselektrode (1, 1') an einer Oberfläche mit einer katalytisch aktiven Schicht, dadurch gekennzeich- 35 net, daß das Beschichten folgende Schritte aufweist:
 - a) intensives Mischen von Edelmetallkatalysator auf Kohlenstoffträger mit gelöstem oder suspendiertem ionenleitendem Polymer,
 - b) Aufbringen der in Schritt a) hergestellten Suspension auf eine Oberfläche der Gasdiffusionselektrode (1, 1'),
 - c) Trocknen der aufgebrachten Schicht.
- 20. Verfahren nach Anspruch 19, dadurch gekenn- 45 zeichnet, daß als Gasdiffüsionselektrode (1, 1') eine Elektrode nach einem der Ansprüche 1 bis 4 verwendet wird.
- 21. Verfahren nach Anspruch 19 oder 20, dadurch gekennzeichnet, daß vor dem Aufbringen der in 50 Schritt a) hergestellten Suspension ein Teil der Suspensionsflüssigkeit verdunstet wird.
- 22. Verfahren nach einem der Ansprüche 19 bis 21, dadurch gekennzeichnet, daß die Schritte b) und c) ein- oder mehrmals wiederholt werden.
- 23. Verfahren nach Anspruch 22, dadurch gekennzeichnet, daß Suspensionen unterschiedlicher Konzentration an Edelmetallkatalysator auf Kohlenstoffträger und ionenleitendem Polymer verwendet werden.
- 24. Verfahren zur Herstellung einer Membran-Elektrodeneinheit (6, 6'), folgende Schritte aufweisend:
 - a) Bereitstellen einer Polymerelektrolytmembran (5) in H⁺-Form mit oder ohne katalytisch 65 aktive Beschichtung,
 - b) Anordnen einer Gasdiffusionselektrode (1,
 - 1') nach einem der Ansprüche 1 bis 4 an einer

oder an beiden Seiten der Polymerelektrolytmembran (5), denn diese katalytisch beschichtet ist oder Anordnen einer Gasdiffusi nselektrode (1, 1') nach einem der Ansprüche 5 bis 7 an einer oder an beiden Seiten der Polymerelektrolytmembran (5), wenn diese nicht katalytisch beschichtet ist,

c) Pressen der Anordnung aus Gasdiffusi nselektrode (1, 1') und Membran (5) bei einem Druck von bis zu 500 bar und einer Temperatur von bis zu 250°C.

Hierzu 1 Seite(n) Zeichnungen

Nummer: Int. Cl.⁶:

Offenlegungstag:

DE 195 44 323 A1 H 01 M 4/94

5. Juni 1997

Abb. 1

